ChinaXiv合作期刊

第51卷 第11期 2015年11月 第1297-1305页
金属学报 ACTA METALLURGICA SINICA
Vol.51 No.11 Nov. 2015 pp.1297-1305

# 充氢超高强度钢拉伸变形的原位中子衍射研究*

徐平光[1) ] 殷 匠[2)] 张书彦[3)]

1) Japan Atomic Energy Agency, Tokai, Ibaraki, 319-1195 Japan
2) 江苏亚星锚链股份有限公司, 靖江 214533
3) Rutherford Appleton Laboratory, Didcot OX11 0QX United Kingdom

**摘 要** 利用飞行时间法中子衍射对比研究了充氢与未充氢1250 MPa超高强度钢的拉伸变形行为与轴向晶格变形特征, 并观察了断口区组织形貌与晶粒取向特征. 在无加载条件下, 充氢试样的轴向(110)与(200)面间距分别大于和小于未充氢试样的对应面间距, 显示出四面体间隙中H原子的进入使轴向(110)面间距有所增加, 同时内部应力的平衡作用使轴向(200)面间距有所减少. 未充氢试样达到1250 MPa抗拉强度发生颈缩塑性断裂, 而含有$8.0\times10^{-6}$可扩散氢的试样在分步加载至500 MPa时发生脆性断裂. 中子衍射分析表明, 未充氢试样在拉应力加载至500 MPa时均基本符合线弹性变形, 但至700 MPa时, 轴向{200}晶粒比其余取向晶粒优先显示非线弹性变形, 至800 MPa时轴向{110}晶粒也出现非线弹性变形, 轴向{200}晶粒优先产生微屈服现象, 而轴向{211}晶粒仍然处于线弹性阶段; 充氢试样在拉伸至300 MPa时, 轴向{110}晶粒出现非线弹性变形, 至400 MPa时轴向{200}晶粒也出现非线弹性变形, 轴向{110}晶粒优先产生微屈服现象, 轴向{211}晶粒仍处于线弹性阶段. 断口剖面观察显示未充氢试样内形成明显的轴向<110>拉伸纤维织构, 而氢脆试样内除了明显的晶界裂纹萌生, 还有晶内裂纹扩展与局部晶体转动特征. 基于不同取向晶粒的微屈服概念, 解释了充氢导致轴向{110}晶粒优先微屈服而不是轴向{200}晶粒优先微屈服, 同时以氢伴随微区塑性变形的方式发生脆性断裂.

**关键词** 脆性断裂, 充氢, 微区塑性变形, 高强度低合金钢, 中子衍射, 晶格应变

**中图法分类号** TG111.91, TG115.22 **文献标识码** A **文章编号** 0412-1961(2015)11-1297-09

# TENSILE DEFORMATION BEHAVIOR OF HYDROGEN CHARGED ULTRAHIGH STRENGTH STEEL STUDIED BY IN SITU NEUTRON DIFFRACTION

*XU Pingguang* [1)], *YIN Jiang* [2)], *ZHANG Shuyan* [3)]

1) Japan Atomic Energy Agency, Tokai, Ibaraki, 319-1195 Japan
2) Jiangsu Asian Star Anchor Chain Co. Ltd., Jingjiang 214533
3) Rutherford Appleton Laboratory, Didcot OX11 0QX United Kingdom

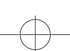
*Correspondent: XU Pingguang, senior researcher, Tel: +81-29-282-6885, E-mail: xu.pingguang@jaea.go.jp*

Manuscript received 2014-09-30, in revised form 2015-07-18

**ABSTRACT** The tensile deformation behavior and the axial lattice strain response of 1250 MPa ultra-high strength steels with and without hydrogen charging were comparably investigated using time-of-flight neutron diffraction together with the fracture morphology and microstructure observation. Before tensile loading, the axial (110) lattice plane spacing of hydrogen charged specimen was found larger than that of non-charged specimen while the axial (200) lattice plane spacing of the former was smaller than that of the latter, suggesting that the hydrogen atoms occupied the tetrahedral site promoted the increment of axial (110) lattice plane spacing while the balanced internal stress resulted in the proper decrement of axial (200) lattice plane spacing. The necking and ductile fracture after approaching the 1250 MPa tensile strength occurred in the non-charged specimen, while the brittle

* 收到初稿日期: 2014-09-30, 收到修改稿日期: 2015-07-18
作者简介: 徐平光, 男, 1973年生, 研究副主干, 博士
DOI: 10.11900/0412.1961.2014.00541

chinaXiv:202303.00548v1



ChinaXiv合作期刊



fracture occurred in the $8.0\times10^{-6}$ hydrogen charged specimen at 500 MPa holding during step-by-step loading. The neutron diffraction analysis showed that in the non-charged specimen, the linear elastic deformation was kept up to 500 MPa loading, the nonlinear elastic deformation was observed preferably on the axial (200) reflection at 700 MPa, and then on the axial (110) reflection at 800 MPa; the axial {200} (*i.e.* <200>//TD, TD—tensile direction) grain orientation-dependent microyielding was observed preferably at 800 MPa while the (211) reflection was still under linear elastic deformation. Comparably, in the hydrogen charged specimen, the nonlinear elastic deformation was observed preferably on the axial (110) reflection at 300 MPa, and then on the axial (200) reflection at 400 MPa; the axial {110} grain orientation-dependent microyielding was observed preferably at 400 MPa while the axial (211) reflection was still under linear elastic deformation. The longitudinally sectioned microstructure observation under fracture surface confirmed the typical <110>-oriented tensile fiber texture in the non-charged specimen while the intergranular cracks along grain boundaries, quasi-cleavage/cleavage cracks and local crystal rotation in various grains of the hydrogen charged specimen. A concept about crystallographic orientation dependent microyielding was employed here to explain the above results, *i.e.* the hydrogen charging promoted the axial {110} grain orientation-dependent microyielding rather than axial {200} grain orientation-dependent microyielding, and the diffusible hydrogen embrittled the matrix microstructure, accompanying with local plastic deformation.

**KEY WORDS** brittle fracture, hydrogen charging, local plastic deformation, high strength low alloy steel, neutron diffraction, lattice strain

chinaXiv:202303.00548v1

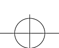
众所周知, 高强度钢的使用可以显著降低机械自重, 明显提高能源利用效率并降低设备维护成本. 在高强度钢的长期服役过程中, 环境氢致脆断作为一种主要低应力材料失效现象受到人们的长期重视[1], 分别在材料氢脆机制[2~8]、材料氢脆敏感性[9~13]、延迟断裂评价[13,14]、氢脆改善方法[15~17]等方面开展了大量的研究工作. 近来, 利用氢及其同位素的中子散射截面较大和中子穿透力较高的特征[18], 已有人研究了不同条件的氢与材料的相互作用以及与其微观晶体结构之间的内在关系[19~24]. 如Nash等[21]用飞行时间法中子衍射(time-of-flight neutron diffraction)研究了紧凑拉伸疲劳试样恒定加载保持时裂纹尖端的应变场变化, 发现了充氢后在距离裂纹尖端不同位置的各取向晶面平均应变都比未充氢测定时有所增加. Hoelzel等[22]用角度分散法中子衍射(angle dispersive neutron diffraction)研究了奥氏体不锈钢高压低温(80 K)环境充氢和充氘对晶体结构的影响, 表明氢在钢中占据奥氏体晶胞的八面体间隙位置, 而且晶胞体积随充氢浓度的增加而增大. Castellote等[23]用角度分散法中子衍射研究了不同充氢条件下冷拔珠光体钢的晶体结构, 也表明了充氢导致铁素体晶胞体积的增加. Ishikawa等[24]用角度分散法中子衍射研究了氢致焊接接头的低温开裂现象及其相关残余应力分布, 表明焊接后冷却导致的拉伸残余应力与接头附近的氢富集导致的晶界脆化是焊接接头低温开裂的主要原因. 这些研究表明, 中子衍射作为一种新型手段, 能够对高强度钢的延迟断裂与氢脆研究发挥重要作用.

在建设大型海洋平台结构加快海洋资源开发的过程中, 超高强度钢的有效安全使用是有必要先行进行技术保证的关键环节之一. 海洋平台结构需经受因风暴、巨浪和洋流产生的动载张力, 长年在酷暑或严寒的海水环境中服役, 必须具有较高的强塑性和良好的低温韧性, 特别是要有较低的环境断裂敏感性和较高的耐蚀能力. 结合近期发表的未充氢试样的部分中子衍射实验结果[25], 本工作对比了充氢和未充氢条件下超高强度系泊链钢拉伸变形的晶格应变特征, 并通过断口剖面组织观察, 探讨了可扩散氢对微屈服[26]与塑性变形的影响机制.

## 1 实验方法

实验用钢的化学成分为: 0.22C-0.25Si-0.70Mn-3.40(Cr+Ni+Mo)-0.13(Nb+V+Ti) (质量分数, %). 经过连铸-热轧-剥皮后得到直径为87 mm的圆钢, 再制链-闪光焊接后得到直径为84 mm的系泊链, 在1273 K加热1 h后水冷, 再在873 K回火1 h. 在链环平直部分的截面$r/3$ ($r$为半径)位置处抽取标准圆柱拉伸试样, 并且该处所取的各试样之间不存在显著的组织和宏观力学特性差异. 虽然通常采用缺口拉伸试样以利用应力集中使氢脆现象更加显著[1], 本工作中为缩短中子衍射谱线采集所需时间并捕捉到氢脆现象, 采用了直径8 mm的光滑试样(平直部分的长度为30 mm)来获得较大的衍射取样体积与较均匀的变形区域[25].

电化学充氢的电解溶液为3% NaCl+0.3 g/L $NH_4SCN$, 阴极充氢72 h, 电流强度为0.05 mA/cm$^2$. 由于防止氢逸失所采用的Cd金属镀层对中子的吸



ChinaXiv合作期刊



chinaXiv:202303.00548v1

收能力较强, 本研究中采用氯化铵酸性镀Zn溶液来电镀Zn保护层, 并通过低充氢10%均匀变形预备拉伸以确认Zn镀层无早期剥离. 试样充氢并镀Zn后置于保冷箱(5~7 ℃)中保持120 h后进行中子衍射实验. 另一部分充氢镀Zn试样也在保冷箱内保持120 h后进行Zn镀层剥离实验, 然后用升温脱氢分析装置(thermal desorption spectrometry, TDS)分析可扩散氢含量.

中子衍射实验在ENGIN-X飞行时间谱仪上进行, 其中北侧检测器得到的谱线反映实验钢的轴向变形特征; 南侧检测器得到的谱线反映实验钢的径向变形特征. 飞行时间法中子衍射谱线(time-of-flight ($t$) *vs* intensity ($I$))通过预先精密标定的谱线转换系数DIFC, DIFA和ZERO ($t$=DIFC×$d$+DIFA×$d^2$+ZERO)进行转换得到衍射晶面间距谱线($d$ *vs* $I$). 由于圆柱拉伸试样的径向变形小于轴向变形, 不易捕捉氢脆导致的径向变形差异, 本研究中仅对比研究充氢与未充氢试样的轴向变形. 同时, 在试样的平直部分装有Instron引伸计以监测试样的宏观应变. 为保证试样的拉伸轴向相对于中子束的位置和消除夹具间的间隙影响, 在正式拉伸变形加载前施加了10 MPa的预载. 通过中子衍射谱线的单峰拟合得到特定衍射面($hkl$)的晶面间距$d_{hkl}$, 通过计算晶面间距$d_{hkl}$相对于初始晶面间距$d_{hkl,0}$的相对变化量($d_{hkl}$–$d_{hkl,0}$)/$d_{hkl,0}$来评价轴向{$hkl$}特定取向晶粒的弹性应变$\varepsilon_{hkl}$.

利用S-4300SE场发射扫描电子显微镜(SEM)观察中子衍射拉伸试样的断口形貌特征; 利用线切割纵向解剖样品之后, 用SEM观察断口表层附近的剖面微观组织与裂纹扩展特征, 并用电子背散射衍射(EBSD)分析技术对表层附近的局部组织与二次裂纹萌生进行晶粒取向分析.

## 2 实验结果与分析讨论

### 2.1 充氢实验与扩散氢量分析

图1给出了充氢试样在保冷箱放置120 h后的升温脱氢过程, 可扩散氢含量为8.0×10$^{-6}$. 而未充氢试样的可扩散性氢含量低于6.0×10$^{-8}$ [25]. 文献[27]表明, 氢在大气中常温条件下高强度钢中的扩散系数$D_{Fe}$为6.3×10$^{-5}$ mm$^2$/s, 而其在Zn镀层中的扩散系数$D_{Zn}$为6.9×10$^{-10}$ mm$^2$/s; 在室温处于8 μm厚Zn镀层保护条件下的直径10 mm钢棒中, 自然逸失初始可扩散氢含量的50%所需时间约为650 h. 另一方面, 氢在钢中的高扩散系数使得120 h保冷箱保存可以使氢在圆柱钢铁试样中趋于宏观均匀分布.

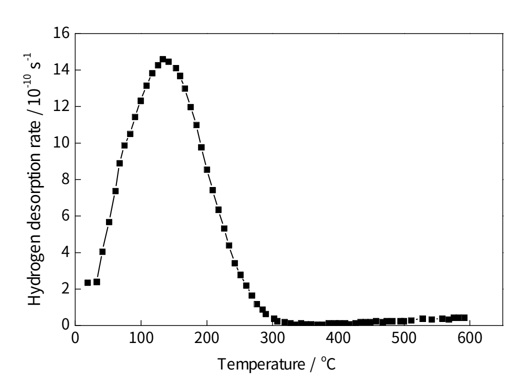



**图1** 充氢镀Zn高强度实验钢在5~7 ℃放置120 h后的可扩散氢的脱氢分析曲线

**Fig.1** Thermal desorption analysis curve of diffusional hydrogen in the hydrogen charged and zinc-plated high strength steel specimen after 120 h air exposure at 5~7 ℃

### 2.2 拉伸实验

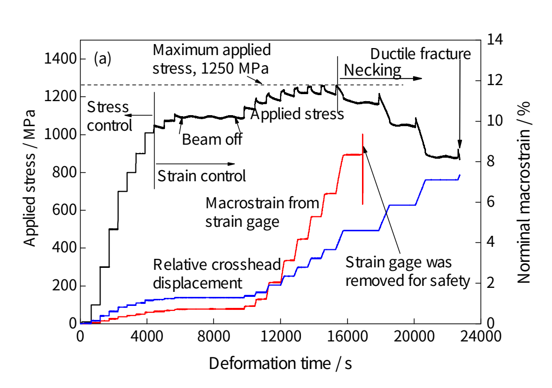
拉伸速率为0.1 mm/min (应变率为5.5×10$^{-5}$ s$^{-1}$)的预备实验结果显示, 实验钢的抗拉强度为1270 MPa, 屈服强度为1160 MPa, 总延伸率为18.5%, 断面收缩率为60%. 在未充氢试样的原位拉伸实验过程中, 低于1000 MPa的外加载荷时, 通过控制和保持外加载荷应力以得到较准确的弹性应变; 在大于1000 MPa的外加载荷时转换为通过控制和保持引伸计测到的宏观应变来得到较准确的塑性应变, 同时使用塑性应力松弛基本结束时所对应的应力作为中子衍射谱线采集期间的平均应力; 在外加载荷超过1250 MPa, 颈缩发生后移除引伸计, 再通过拉伸夹头的相对位移量来控制宏观塑性变形量, 直至塑性断裂. 对于充氢试样的原位拉伸实验过程, 图2给出了原位拉伸实验时记录的分步加载拉伸变形过程数据. 红线为引伸计记录的宏观应变, 蓝线为拉伸夹头的相对位移. 可以看出, 在500 MPa保持中发生脆性断裂前记录到了很小的塑性变形.

### 2.3 未充氢试样的原位拉伸晶格弹性应变

图3为拉伸过程中轴向(110)与(200)衍射峰的波峰偏移情况[25]. 图中黑线表示正式加载前的波峰形状; 颈缩前波峰偏移达到最大值, 如蓝线所示; 断裂卸载后的波峰形状如图中红线所示, 轴向(110)衍射峰显示出一定的残余压缩应变特征($d_{110}$<$d_{110,0}$). 对比黑线、蓝线与红线可以看出, (200)衍射峰变弱、变平坦, 这是由于拉伸变形过程中形成了<110>纤维织构. 图4为分步拉伸变形过程中未充氢试样的晶格应变与加载应力的关系[25]. 塑性应变$\varepsilon$=0.2%对应的应力(红色点线与宏观应变曲线交点处的应

ChinaXiv合作期刊





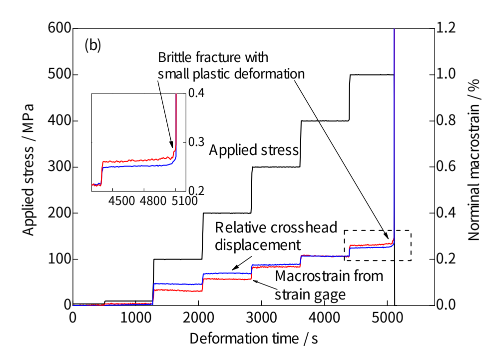




**图2** 未充氢试样[25]和充氢试样的分步加载拉伸变形过程

**Fig.2** Step-by-step tensile deformation and fracture responses

(a) uniform deformation, necking and ductile fracture of non-charged specimen[25]

(b) uniform deformation and brittle fracture of hydrogen-charged specimen, while the small plastic deformation was monitored both by macrostrain from strain gage and relative crosshead displacement (Dashed line marked region was enlarged in the inserted figure)

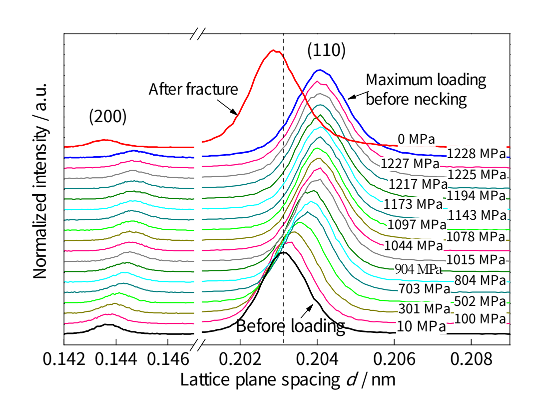



**图3** 未充氢试样(110)与(200)衍射峰在拉伸变形过程中的波峰偏移[25]

**Fig.3** Peak shift of (110) and (200) diffraction peaks of non-charged specimen during step-by-step tensile deformation[25]

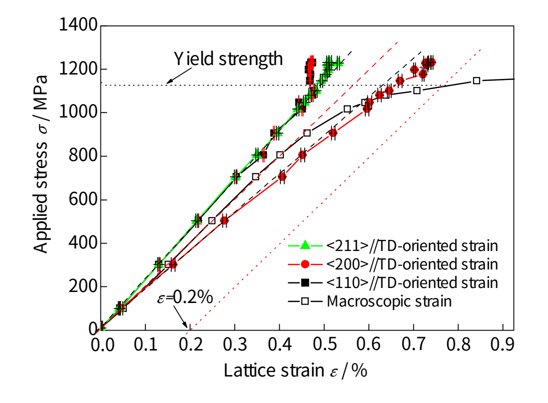


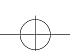

**图4** 拉伸变形过程中未充氢试样的宏观应变与<*hkl*>//TD取向晶粒的晶格应变的变化[25]

**Fig.4** Changes in macroscopic strain and <*hkl*>//TD orientation-dependent lattice strain of non-charged specimen during step-by-step tensile deformation (TD—tensile direction)[25]

力, 约为1120 MPa)与0.2%条件屈服强度接近. 结果显示, 在500 MPa以前, 各取向晶粒变形均符合线弹性. 通过分析由引伸计测试到的宏观线弹性变形的斜率, 可得到宏观弹性模量 $E_{hkl}$=198 GPa; 通过分析各取向晶粒的线弹性变形的斜率, 可得弹性模量 $E_{110}$=225 GPa, $E_{200}$=178 GPa, $E_{211}$=229 GPa; 至700 MPa时, 轴向{200}晶粒的晶格应变大于图4中相应虚线所对应的轴向{200}晶粒线弹性应变, 呈现出非线弹性变形, 而轴向{110}与{211}晶粒此时仍处于线弹性阶段; 至800 MPa时, 轴向{110}晶粒的晶格应变大于图4中相应虚线所对应的轴向{110}晶粒线弹性应变、呈现非线弹性变形, 而轴向{211}晶粒仍处于线弹性阶段, 轴向{200}晶粒的偏离程度则反而有所减弱, 由非线弹性变形状态回到近似线弹性变形状态.

这种不均匀的非线弹性变形状态回到近似线弹性变形状态是否与微屈服[26]有关, 还是仅仅是由于实验误差所致, 值得探讨. 如果是后者, 说明宏观屈服前没有微屈服存在, 又或是微屈服与特定取向晶粒优先变形无关, 故而这种原位拉伸不足以表征微屈服现象. 这里先假定宏观屈服前有微屈服现象存在, 而且它与特定取向晶粒有关. 众所周知, 在完全退火情况下, 普通低碳钢有明显的上屈服点与下屈服点, 上屈服点对应开始屈服时的非线弹性最大应力, 下屈服点对应塑性变形开始时, 流变应力下降过程中的最小应力, 同时试样的宏观应变是不均匀的, 当宏观应力达到上屈服点时在应力集中处开始塑性变形, 在试样表面产生Lüders带, 应力降到下屈服点. 一般情况下[28], 铁素体不锈钢中轴向{200}晶粒(具有<200>//TD (tensile direction)取向的

chinaXiv:202303.00548v1



ChinaXiv合作期刊



chinaXiv:202303.00548v1

晶粒)为软取向晶粒, 弹性模量较低, 约为125 GPa; 轴向{110}晶粒(具有<110>//TD取向的晶粒)为硬取向晶粒, 弹性模量较高, 约为210 GPa. 本工作中的各取向晶粒的弹性模量均高于文献值, 且异向性差异较小, 这与实验钢的化学成分、微观组织等不同有关. 虽然本工作中的试样没有观察到明显的宏观上、下屈服点与Lüders带, 仍可以根据晶粒的上述弹性模量异向性推定微屈服优先在具有<200>//TD的晶粒中发生, 形成“微观上屈服点”, 故而700 MPa时轴向{200}晶粒的非线弹性应变较大; 而在800 MPa时, 由于微屈服较为显著, 处于“微观下屈服点”, 故而800 MPa时轴向{200}晶粒的非线弹性应变相对略有减小, 近似线弹性应变(注意, 此时的局部塑性应变不能由非弹性应变来直接推定). 为平衡增加的宏观应力, 此时轴向{110}晶粒分担了比正常线弹性变形情况下更大的弹性应力, 产生非线弹性现象, 即轴向{110}晶粒表现出较大的非线弹性应变, 达到了其“微观上屈服点”. 到900 MPa时, 轴向{110}晶粒有明显屈服, 处于“微观下屈服点”, 非线弹性应变略有减小, 对应的轴向{200}晶粒此时却开始了加工硬化, 可以分担较大的应力, 表现出较大的弹性应变. 在更高应力时, 轴向{110}与{200}晶粒都处于加工硬化状态, 逐渐表现出连续宏观屈服现象. 故此认为, 图4中的实验现象与不同取向晶粒的微屈服差异有关. 在奥氏体不锈钢的拉伸变形原位中子衍射过程中[29], 在200 MPa附近(低于265 MPa屈服极限)出现了基于不同取向晶粒的微屈服差异(轴向{200}晶粒优先于轴向{111}晶粒微屈服), 不过没有对此现象进行具体讨论.

## 2.4 充氢试样的原位拉伸晶格弹性应变

图5表示拉伸变形过程中轴向(110)与(200)衍射峰的波峰偏移状况. 黑线表示正式加载前的波峰形状, 蓝线为脆断前的最大偏移, 断裂卸载后的波峰形状如红线所示. 黑色虚线代表初始(110)晶面间距, 可见卸载后的波峰中心位置没有明显偏离初始的(110)面间距($d_{110}≈d_{110,0}$), 该现象表明卸载后试样中的残余应力较小, 明显不同于图3. 由于塑性变形量很小, 从黑线、蓝线与红线的对比中看不出(200)衍射峰的强度与形状有明显变化. 图6是充氢试样晶格点阵应变与加载应力的关系, 同时给出了引伸计所记录的宏观应变, 直至500 MPa保持中发生脆性断裂, 仍未达到0.2%条件塑性应变. 在200 MPa以前, 各取向晶粒较好地符合线弹性变形, 宏观弹性模量$E_{hkl}$=197 GPa, 各取向晶粒的弹性模量$E_{110}$=233 GPa, $E_{200}$=177 GPa, $E_{211}$=231 GPa, 显示充氢对弹性模量的影响不大; 但至300 MPa, 轴向{110}晶粒出现一定的偏离, 表现出非线弹性变形, 即到达{110}“微观上屈服点”, 此时轴向{200}和{211}晶粒还处于线弹性阶段, 因此试样中存在明显不均匀的非线弹性变形. 至400 MPa, 轴向{200}晶粒开始表现出明显的非线弹性变形, 到达{200}“微观上屈服点”, 轴向{110}晶粒显示出较小的非弹性变形, 根据前文中基于不同取向晶粒的微屈服模型解释, 轴向{110}晶粒此时已到达“微观下屈服点”, 直到此时, 轴向{211}晶粒仍处于线弹性阶段. 拉伸到500 MPa, 轴向{110}晶粒已开始加工硬化, 轴向{200}晶粒此时向“微观下屈服点”接近而显示较小的非线弹性变形. 但直到脆性断裂发生, 这种微屈服还不足以诱发轴向{211}晶粒的非弹性变形与微屈服.

在未充氢实验用钢中, 轴向{200}晶粒优先开始非线弹性变形而后产生微屈服现象, 而在充氢实

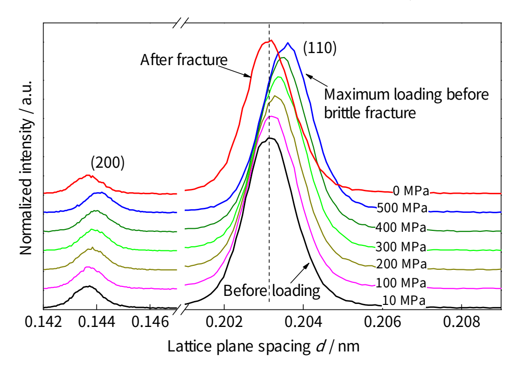



**图5** 充氢试样(110)与(200)衍射峰在拉伸变形过程中的波峰偏移

**Fig.5** Peak shift of (110) and (200) diffraction peaks of hydrogen-charged specimen during step-by-step tensile deformation

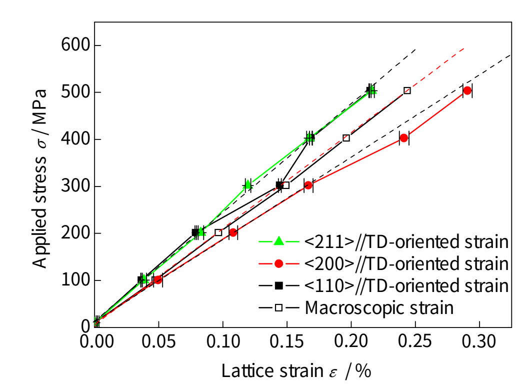



**图6** 拉伸变形过程中充氢试样的宏观应变与<*hkl*>//TD取向晶粒的晶格应变的变化

**Fig.6** Changes in macroscopic strain and <*hkl*>//TD orientation-dependent lattice strain of hydrogen-charged specimen during tensile deformation

ChinaXiv合作期刊



chinaXiv:202303.00548v1

验用钢中, 轴向{110}晶粒优先开始非线弹性变形而后产生微屈服现象. 为讨论产生这种不同变形特征的原因, 有必要分析氢在钢中的存在方式[23]: 一部分氢扩散进入钢中形成间隙固溶, 另一部分偏聚在空位、位错、夹杂物边界、晶界等点阵缺陷处. 钢的氢脆主要取决于可扩散氢含量而不是偏聚氢含量, 氢扩散至点阵缺陷处形成三向应力, 就像基体碳化物导致的裂纹尖端或空洞一样. H原子弱化裂纹尖端Fe原子间的结合强度和解理面间的解理强度, 它的累积会导致Fe原子点阵分离形成裂纹. 文献[6,7,22]预测这种弱化效应与低浓度可扩散氢在铁素体钢中的四面体间隙占位, 在奥氏体钢中的八面体间隙占位有关. 此外, 固溶氢增加位错的可动性, 导致局部塑性变形, 形成低应力氢脆断裂过程中的局部塑性断裂[5].

在本研究中, 用飞行时间法中子衍射对比研究了未加载条件下充氢并镀Zn对铁素体晶胞结构的影响, 由于可扩散氢含量较低, 全谱拟合分析得到的点阵常数的增加并不是十分明显(表1). 如果用单峰拟合来分析各衍射晶面的面间距, 如表1所示, 充氢后轴向(110)面间距均大于未充氢的相应面间距, 同时轴向(200)面间距均小于未充氢的相应面间距, 轴向(211)面间距没有明显差异. 这说明氢在铁素体里的分布是不均匀的, 与晶粒取向有关. 由于铁素体钢中四面体间隙的氢占位周围是4个最近邻(110)面, 而不是(200)或(211)面, 因此认为(110)面间距变大应当与充氢有关, (200)面间距变小则是内部应力平衡形成的晶粒间应力所致. 充氢后(110)面间距增加减小了轴向{110}晶粒原子间的结合强度, 相反(200)面间距的减小相对地增加了轴向{200}晶粒原子间的结合强度, 从而导致了充氢条件下<110>//TD取向晶粒在较低的加载应力(300 MPa)下达到“微观上屈服点”然后开始微屈服. 在<110>//TD取向晶粒处于“微观下屈服点”显著屈服时, 具有<200>//TD取向的晶粒作为相对的硬取向晶粒, 为分担加载应力(400 MPa)发生明显的非弹性变形. 在500 MPa时, <200>//TD取向晶粒也发生了微屈服, 而此时<110>//TD晶粒已开始加工硬化, 但轴向{211}晶粒还未屈服, 材料处于应力微观过载状态, 解理裂纹/准解理裂纹扩展导致低应力断裂, 同时尽管宏观塑性变形与加工硬化不显著, 这种微屈服现象与局部塑性变形还是可以通过脆性断口附近组织的晶粒转动或晶粒拉长得到证实. 在另一方面, 微屈服与局部塑性变形导致氢在晶体缺陷处偏聚, 在局部应力作用下在晶粒边界处萌生沿晶扩展裂纹, 它与微屈服导致的解理裂纹扩展共同作用形成了整体上的脆性断裂现象.

### 2.5 拉伸断口观察与局部晶粒取向评价

图7分别给出了未充氢与充氢试样断裂后的断口形貌特征. 图7a表明未充氢试样的拉伸断口出现了明显的颈缩和较宽的环形剪切唇, 并伴随有明显的纵向二次裂纹[25]. 图7b显示断口中心的方框标记区域为微观纵向二次裂纹与细小的韧窝, 这些均表明实验钢在未充氢条件下具有良好的塑性[25]. 图7c观察表明, 充氢试样虽然没有明显的颈缩现象, 但是有45°局部塑性断裂特征. 图7d中, 宏观断口由Z字形脆性扩展区(如图中线圈所示)及其周围的剪切唇构成. 进一步观察图7d中白点附近的断口形貌如图7e所示, 可见发生了明显的沿晶断裂, 也出现了若干解理小刻面(即准解理现象). 由于解理小刻面之间通常通过局部剪切方式来连接, 进而导致准解理断口局部凹凸不平, 这意味着存在微区塑性变形. 试样中心的微区塑性变形与试样外边缘的剪切唇的存在与在原位拉伸实验过程中用引伸计记录

**表1** 未加载状态拉伸试样的全谱拟合点阵常数与单峰拟合分析晶面间距

**Table 1** Full refinement lattice parameter and single peak fitted interplanar spacing before loading

($10^{-10}$ m)

| Specimen | Lattice parameter | (110) interplanar spacing | (200) interplanar spacing | (211) interplanar spacing |
|---|---|---|---|---|
| Non-charged, No.1 | 2.86968±0.00003 | 2.02929±0.00003 | 1.43502±0.00006 | 1.17151±0.00003 |
| Hydrogen charged, No.2 | 2.86967±0.00002 | 2.02932±0.00002 | 1.43488±0.00004 | 1.17151±0.00002 |
| Change in No.2 and No.1 | −0.00001 | 0.00003 | −0.00014 | 0.00000 |
| Hydrogen charged, No.3 | 2.86971±0.00003 | 2.02936±0.00002 | 1.43490±0.00005 | 1.17154±0.00002 |
| Change in No.3 and No.1 | 0.00003 | 0.00007 | −0.00012 | 0.00003 |

Note: diffusional hydrogen concentrations of specimens No.2 and No.3 are $8.0\times10^{-6}$

ChinaXiv合作期刊



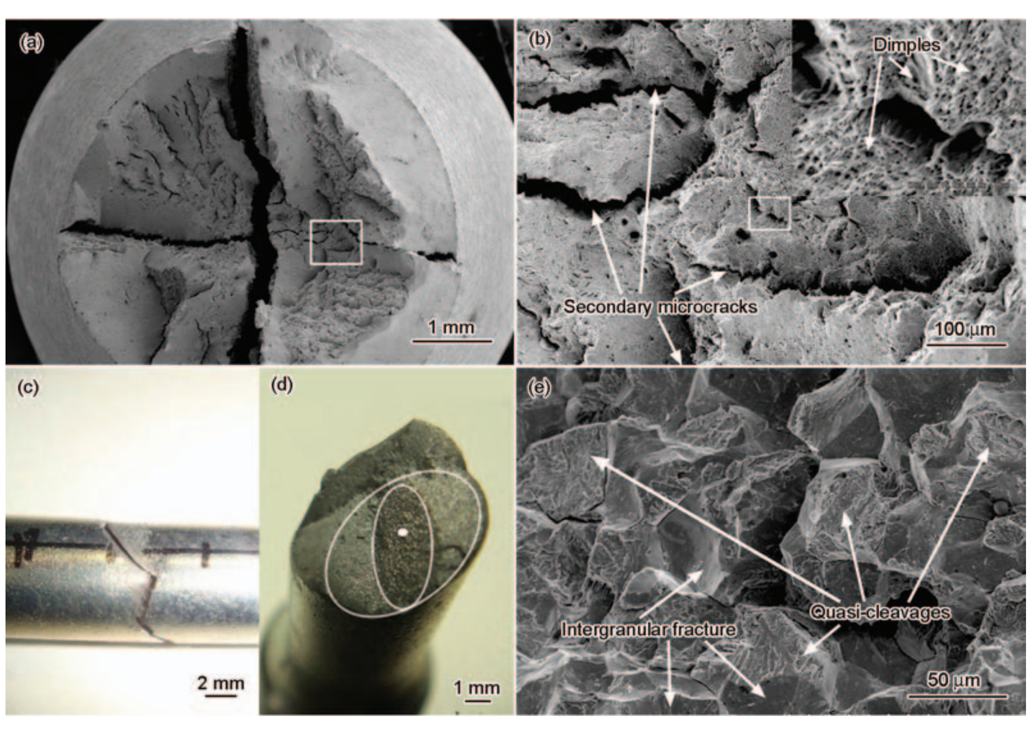



**图 7** 未充氢试样与充氢试样的断口形貌

**Fig.7** Fracture morphologies of non-charged specimen (a, b) and hydrogen-charged specimen (c~e)

(a) ductile fracture, cup-and-cone shear band edge and longitudinal secondary cracks, where the marked square region was enlarged in Fig.7b

(b) ductile fracture, secondary microcracks and dimples, where the marked square region was further enlarged in an inserted view at the right-up corner

(c) brittle fracture, non-necking but with 45° local shear band edge

(d) brittle fracture, zigzag macroscopic fracture (in the circles), accompanying with local shear band edge

(e) brittle fracture, intergranular facture and quasi-cleavage, an enlarged view near the white point marked in Fig.7d

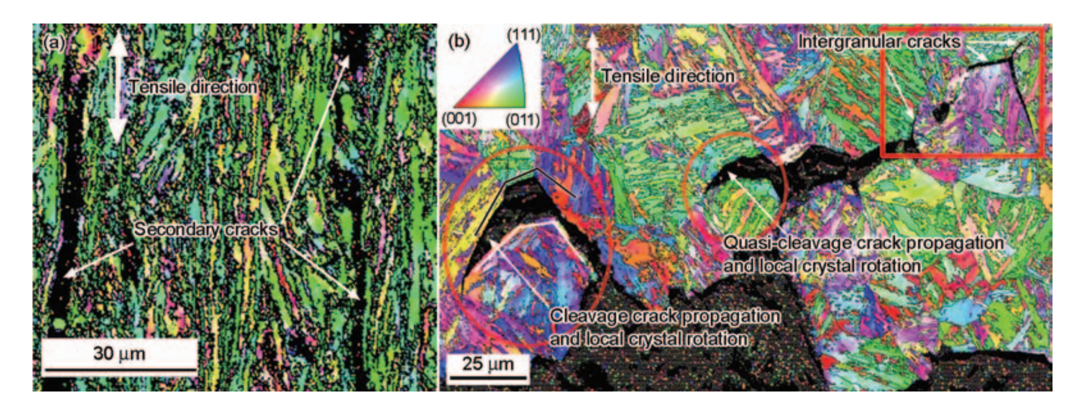



**图 8** 原位拉伸试样的纵剖面组织取向特征及裂纹萌生与二次裂纹扩展行为

**Fig.8** Microstructures near longitudinally sectioned fracture of in situ tensile specimens, where the inverse pole figure mappings were obtained according to the tensile direction

(a) strong <110>-oriented elongated bainite ferrite and secondary cracks along tensile direction of non-charged specimen

(b) quasi-cleavage (with blunting crack tip) and cleavage (with sharpening crack tip) cracks propagate into various grains accompanying with local crystal rotations (in the circle regions) while intergranular cracks initiate along grain boundaries (in the square box region) in hydrogen-charged specimen

到的有局部伸长的脆断现象较为吻合. 另一方面, 准解理面的出现说明主裂纹经过了若干晶粒内部的扩展, 而非仅仅沿晶界扩展, 这表明研究拉伸过程中晶体内部的微观变形对氢脆特征研究具有重

chinaXiv:202303.00548v1

ChinaXiv合作期刊



chinaXiv:202303.00548v1

要意义.

图8a给出了未充氢原位拉伸试样断口的纵剖面显微组织. 可以看出, 各贝氏体铁素体均沿拉伸方向显著伸长, 其(110)面也大多都垂直于拉伸方向, 显示出单轴拉伸塑性变形所具有的典型晶粒取向特征, 而且颈缩导致断口附近三向拉应力集中、出现纵向二次裂纹, 形成二次裂纹的能量需求对提高钢的断裂韧性有益. 图8b给出了充氢原位拉伸试样断口的纵剖面显微组织、裂纹萌生与二次裂纹扩展特征. 右上角方框内的三叉尖锐裂纹是沿着晶界萌生的, 但是某些二次裂纹也扩展到晶粒内部(以红色圆圈表示), 形成裂纹转向或分叉. 假定裂纹扩展过程中未发生局部塑性变形, 则这些二次裂纹的两侧可以通过晶体刚性旋转或平移来实现裂纹的完全闭合. 但是, 实际上图中的白色折线边界, 无法与黑色折线附近的相邻边界实现完全闭合, 表明该部分晶粒在裂纹张开过程中, 发生了局部拉伸塑性变形. 轴向{110}晶粒(小红色圆圈所包围的浅黄绿色区域)中的裂纹尖端较为钝化, 显示出准解理特征; 轴向{200}晶粒(大红色圆圈所包围的深红橙色区域)中的裂纹尖端较为尖锐, 显示出解理特征. 该观察证实了上一节的推断, 并与文献[3,5,17]相符合, 即氢致脆断时除断裂应力显著降低外, 还会有局部塑性变形现象的出现.

## 3 结论

(1) 含有 $8.0\times10^{-6}$ 可扩散氢的圆柱试样在原位拉伸加载至500 MPa脆断, 而未充氢试样在达到1250 MPa抗拉强度后颈缩塑性断裂, 显示出了明显的宏观拉伸变形差异.

(2) 未加载条件下, 充氢后轴向(110)面间距均大于未充氢的相应面间距, 同时轴向(200)面间距均小于未充氢的相应面间距, 表明可扩散氢在超高强度钢中的分布不均匀, 与晶粒取向有关.

(3) 充氢导致的不均匀氢分布使轴向{110}晶粒优先微屈服、加快晶粒转动, 导致充氢试样表现出不同于未充氢试样轴向{200}晶粒优先屈服的变形特征.

(4) 断口剖面观察显示氢脆试样有晶内裂纹扩展与局部晶体转动, 表明充氢试样是以氢伴随微区塑性变形而脆化基体的方式发生脆性断裂的.

## 参考文献


[1] Matsuyama S. *Delayed Fracture*. Tokyo: The Nikkan Kogyo Shimbun, Ltd., 1989: 25
(松山晋作. 遅れ破壊. 東京: 日刊工業新聞社, 1989: 25)

[2] Long Q W. *Acta Metall Sin*, 1980; 16: 109
(龙期威. 金属学报, 1980; 16: 109)

[3] Zhang T Y, Chu W Y, Xiao J M. *Sci China*, 1986; 16A: 316
(张统一, 褚武扬, 肖纪美. 中国科学, 1986; 16A: 316)

[4] Jiang S R, Quan H S. *Acta Phys Sin*, 1992; 41: 48
(蒋生蕊, 权宏顺. 物理学报, 1992; 41: 48)

[5] Liang Y, Sofronis P, Aravas N. *Acta Mater*, 2003; 51: 2717

[6] Sanchez J, Fullea J, Andrade C, de Andres P L. *Phys Rev*, 2008; 78B: 014113

[7] Castedo A, Sanchez J, Fullea J, Andrade M C, de Andres P L. *Phys Rev*, 2011; 84B: 094101

[8] Anderson T L. *Fracture Mechanics: Fundamentals and Applications*. 3rd Ed., Tokyo: Morikita. Co, 2011: 525

[9] Zhang L X, Li L G. *Acta Metall Sin*, 1982; 18: 402
(张立新, 李黎光. 金属学报, 1982; 18: 402)

[10] Wang M Q, Dong H, Hui W J, Shi J, Akiyama E, Tsuzaki K. *Trans Met Heat Treat*, 2006; 27(4): 57
(王毛球, 董 瀚, 惠卫军, 时 捷, 秋山英二, 津崎兼彰. 材料热处理学报, 2006; 27(4): 57)

[11] Wang M Q, Akiyama E, Tsuzaki K. *Mater Sci Eng*, 2005; A398: 37

[12] Maier H J, Kaesche H. *Mater Sci Eng*, 1989; A117: L11

[13] Moro I, Briottet L, Lemoine P, Andrieu E, Blanc C, Odemer G. *Mater Sci Eng*, 2006; A527: 7252

[14] Akiyama E. *ISIJ Int*, 2012; 52: 307

[15] Wurushihara W, Yuse F, Nakayama T, Namimura Y, Ibaraki N. *Kobe Steel Eng Rep*, 2002; 52(3): 57
(漆原亘, 湯瀬文雄, 中山武典, 並村裕一, 茨城信彦. 神戸製鋼技報, 2002; 52(3): 57)

[16] Hagihara Y, Shobu T, Hisamori N, Suzuki H, Takai K, Hirai K. *Tetsu Hagané*, 2011; 97: 143
(萩原行人, 菖蒲敬人, 久森紀之, 鈴木啓史, 高井健一, 平井敬二. 鉄と鋼, 2011; 97: 143)

[17] Nagumo M. *ISIJ Int*, 2001; 43: 590

[18] Baird J K, Schwartz E M. *Z Phys Chemie Bd*, 1999; 211: 47

[19] Ligenza S, Paluchowska B, Konwicki M. *Phys Stat Solid*, 1988; 106A: K71

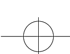
[20] Yuan X Z, Wu E D, Guo X M, Du X M, Sun K, Chen D F, Chen B, Sun G A. *Atomic Energy Sci Technol*, 2007; 41: 517
(苑学众, 吴尔冬, 郭秀梅, 杜晓明, 孙 凯, 陈东风, 陈 波, 孙光爱. 原子能科学技术, 2007; 41: 517)

[21] Nash G L, Choo H, Nash P, Daemn L L, Bourke M A M. *Adv X-ray Anal*, 2003; 46: 238

[22] Hoelzel M, Danilkin S A, Ehrenberg H, Toebbens D M, Udovic T J, Fuess H, Wipf H. *Mater Sci Eng*, 2004; A384: 255

[23] Castellote M, Fullea J, de Viedma P G, Andrade C, Alonso C, Llorente I, Turrillas X, Campo J, Schweitzer J S, Spillane T, Livingston R A, Rolfs C, Becker H W. *Nucl Inst Methods Phys Res*, 2007; 259B: 975

[24] Ishikawa N, Sueyoshi H, Suzuki H, Akita K. *Quart J Jpn Weld Soc*, 2011; 29: 218

ChinaXiv合作期刊



(石川信行, 末吉仁, 鈴木裕士, 秋田貢一．溶接学会論文集, 2011; 29: 218)

[25] Yin J, Xu P G, Zhang S Y. *Heat Treat*, 2013; 28(6): 5
(殷 匠, 徐平光, 张书彦. 热处理, 2013; 28(6): 5)

[26] Abel A, Nuir H. *Acta Metall*, 1973; 21: 99

[27] Suzuki N, Ishii N, Miyagawa T. *Tetsu Hagané*, 1996; 82: 170
(鈴木信一, 石井信幸, 宮川敏夫. 鉄と鋼, 1996; 82: 170)

[28] Lorentzen T. In: Fitzpatrick M E, Lodini A eds., *Analysis of Residual Stress by Diffraction Using Neutron and Synchrotron Radiation*. London: Taylor & Francis, 2003: 114

[29] Clausen B, Lorentzen T, Bourke M A M, Daymond M R. *Mater Sci Eng*, 1999; A259: 17

(责任编辑:毕淑娟)

chinaXiv:202303.00548v1

